

Produksi *Functionally Graded Material* (FGM) dari *Hydroxyapatite*-Serat Sutra untuk Aplikasi di Bidang Biomaterial dengan Teknik *Pulse Electric Current Sintering*

Tjokorda Gde Tirta Nindhia

Jurusan Teknik Mesin, Universitas Udayana, Jimbaran, Bali, Indonesia

E-mail: nindhia@yahoo.com

ABSTRAK

Penelitian ini bertujuan memproduksi *functionally graded material* (FGM) dari *hydroxyapatite* (Hap)-serat sutra, melalui teknik *pulse electric current sintering* untuk memenuhi tantangan kebutuhan akan bahan jenis ini untuk digunakan dibidang biomaterial. Benda uji terdiri dari 4 lapis dengan ketebalan sama untuk tiap lapisnya sehingga tebal total menjadi 2.5 mm dengan diameter 15 mm. Komposisi lapisan paling bawah adalah 100% serat sutra, setelah itu 90% serat sutra + 10% Hap. Lapisan ketiga dengan komposisi 80% serat sutra + 20% Hap, dan 70% serat sutra + 30% Hap untuk lapisan paling atas. Perilaku produk FGM ini dikarakterisasikan dengan mikroskop optik, mikroskop electron, uji ketangguhan retak *three point bend with single-edge*. Gradasi (*grade*) dari FGM dibuktikan dengan *electron probe micro analyzer* (EPMA). Ketangguhan retak produk ini adalah $0.45 \text{ MPa.m}^{1/2}$. Benda uji masih dapat menahan beban setelah beban maksimum tercapai. Hasil pengamatan dengan optikal mikroskop, elektron mikroskop, dan EPMA menunjukkan HAP-serat sutra FGM dapat dibuat dengan menggunakan cara yang dikembangkan dalam penelitian ini.

Kata kunci: *Hydroxyapatite*, sutra, *functionally graded material* (FGM), *pulse electric current sintering*

ABSTRACT

This research is intended to produce functionally graded material (FGM) of Hydroxyapatite (Hap)-silk fibroin by pulse electric current sintering in facing the need in biomaterial application. The sample is created with 4 layers with the thickness for each layer is 0,625 mm, so that the total samples thickness become 2.5mm, with diameter 15 mm. The carbon die is used to compact the sample. The composition of lower layer is 100% silk fibroin, after that 90% silk fibroin +10% Hap, third layer was 80% silk fibroin + 20%Hap, and 70% silk fibroin +30% Hap for the upper layer. The properties of the FGM product was characterized by optical microscope and scanning electron microscope (SEM), three point bend with single-edge beam fracture toughness test (K_{IC}). The grade of the FGM material is proven by using electron probe micro analyzer (EPMA). The value of fracture toughness is $0.45 \text{ MPa.m}^{1/2}$. The sample still can support the load after maximum load is reached. Optical micrograph and SEM, and result from EPMA indicate that the Hap-silk fibroin FGM can be produce perfectly by using the method that is introduced in this research.

Keywords: *Hydroxyapatite*, silk, *functionally graded material* (FGM), *pulse electric current sintering*.

PENDAHULUAN

Hydroxyapatite (HA) merupakan bahan yang amat menjanjikan untuk bahan implantasi bagi jaringan tubuh karena memiliki biokompatibilitas dan bioaktifitas yang baik. Kristalografi dan sifat-sifat kimia dari HA mendekati struktur yang dimiliki oleh tulang dan gigi, dan HA dapat terikat secara langsung dengan jaringan dan dapat merangsang tumbuhnya jaringan. Hal ini menyebabkan HA digunakan secara luas baik dibidang *orthopedic* dan gigi [1,2,3].

Serat sutra merupakan bahan yang amat menarik karena memiliki sifat mekanik yang baik, memiliki sifat biokompatibilitas, disertai dengan degradabilitas yang amat lambat. Hal ini membuat serat sutra merupakan bahan yang menjanjikan untuk diselidiki lebih lanjut untuk dapat digunakan dibidang *orthopedic* [4]

Saat terjadi kerusakan atau serangan penyakit pada jaringan (*tissues*) seperti pada tulang, *tendons*, atau *ligaments* yang tidak memungkinkan lagi untuk sembuh dengan sendirinya (*self repair*), maka suatu bahan biomaterial akan dibutuhkan bagi proses penyembuhan

Perhatian utama belakangan ini adalah pengembangan suatu matrik protein baru dari serat sutra yang biokompatibel, kuat secara mekanik (mechanically robust) dan dapat direncanakan untuk memiliki spesifikasi mekanik sesuai dengan yang diharapkan [5, 6, 7].

Salah satu ciri dari biomaterial adalah memiliki struktur yang bertingkat (*hierarchical structures*). Selain itu berbagai jaringan memiliki fungsi yang kompleks yang meliputi perubahan secara berlanjut dari suatu struktur atau komposisi ke bagian lainnya. Contohnya struktur tulang yang amat teratur dari padat pada bagian luar (*the cortical bone*) sampai pada bagian dalam yang banyak mengandung rongga (*porous*) merupakan contoh bahan yang bergradasi secara fungsional (*functional gradation*) yang terbentuk karena adanya adaptasi biologi. Struktur seperti ini membuat bahan dapat merespon beban luar secara optimum. Dengan demikian untuk bahan implant buatan (artificial implant) haruslah memiliki struktur yang bergradasi [8].

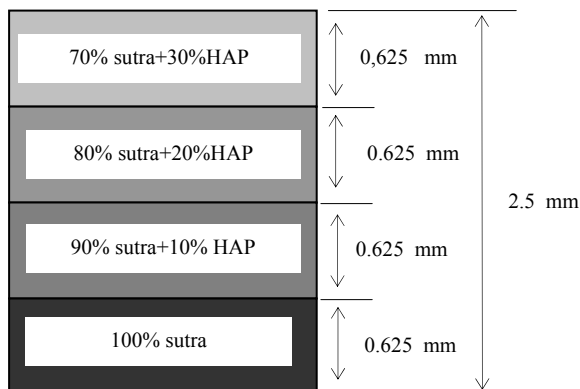
Penelitian ini bertujuan untuk membuat *functionally graded material* (FGM) dari *hydroxyapatite*-serat sutra untuk pemakaian di bidang biomaterial seperti pengantian tulang dan *ligament*.

METODE PENELITIAN

Serbuk *Hydroxyapatite* murni ($\text{HA}, \text{Ca}_{10}(\text{PO}_4)_6(\text{OH})_2$) dengan ukuran butir 10-30 μm (Taiheikagaku, Oosakasi Cyuouku, Japan) dan serat sutra (Kanebou, Sigaken Nagahamasi, Japan) digunakan dalam penelitian ini.

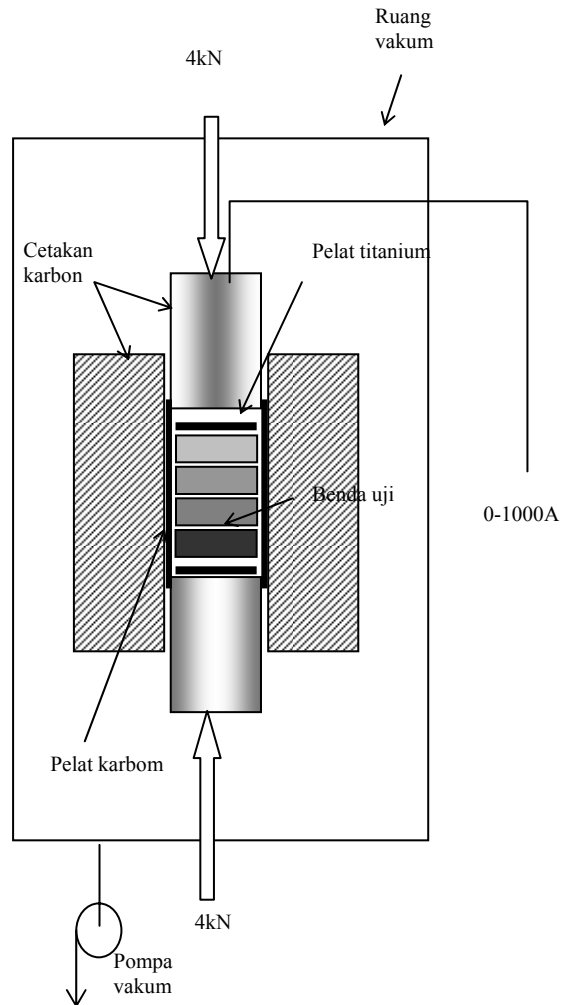
Benda uji dibuat dengan cetakan karbon berbentuk silindris, terdiri dari 4 lapis dengan ketebalan yang sama untuk tiap lapisnya (0.625 mm). Dengan demikian tebal total menjadi 2.5 mm

Komposisi (dalam % berat) lapisan paling bawah adalah 100% serat sutra, setelah itu 90% serat sutra + 10% HAP, lapisan ketiga 80% serat sutra + 20% HAP, dan 70% serat sutra + 30% HAP untuk lapisan paling atas, seperti terlihat pada Gambar 1.



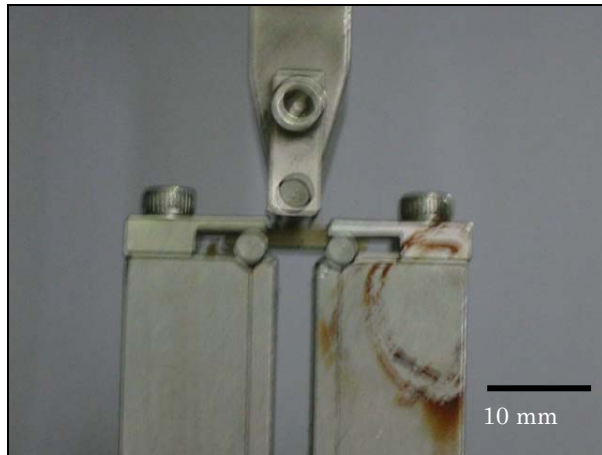
Gambar 1. Susunan Benda Uji *Functionally Graded Material* (FGM) Hydroxyapatite -Serat Sutra

Benda uji selanjutnya disinter dengan teknik *pulse electric current sintering* (SPS-511L, Japan) mencapai suhu 200°C dengan laju pemanasan 100°C/menit dalam kondisi vakum. Proses ini menggunakan gaya tekan sebesar 4kN. Susunan peralatan dapat dilihat pada Gambar 2.

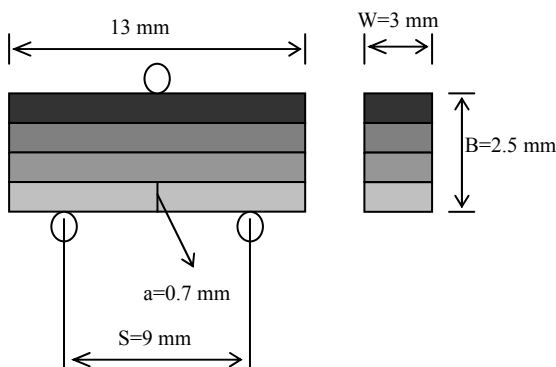


Gambar 2. Peralatan *Pulse Electriccurrent Sintering*

Produk selanjutnya dipotong berbentuk segi-empat untuk pengujian ketangguhan retak (*fracture toughness*). Benda uji disiapkan untuk pengujian *three point bend with single-edge beam fracture toughness test* (K_{Ic}). Pengujian dilakukan dengan menggunakan mesin Instron 4204, USA (Gambar 3). Retak awal dibuat dengan diamond cutter dengan ketebalan 0.1 mm pada lapisan dengan komposisi 70% serat karbon + 30% Hap (Gambar. 4)



Gambar 3. Peralatan Pengujian Ketangguhan Retak Three-Point Bend With Single-Edge Beam Instron 4204, USA.



Gambar 4. Ukuran Benda Uji untuk Pengujian Ketangguhan Retak (K_{IC})

Nilai ketangguhan retak dihitung dengan menggunakan persamaan:

$$K_{IC} = \frac{1.5PS}{BW^{3/2}} Y(\alpha) \sqrt{a}$$

$$\alpha = \frac{a}{W}$$

$$Y(\alpha) = \frac{1.99 - \alpha(1 - \alpha)(2.15 - 3.93\alpha + 2.7\alpha^2)}{(1 + 2\alpha)(1 - \alpha)^{3/2}}$$

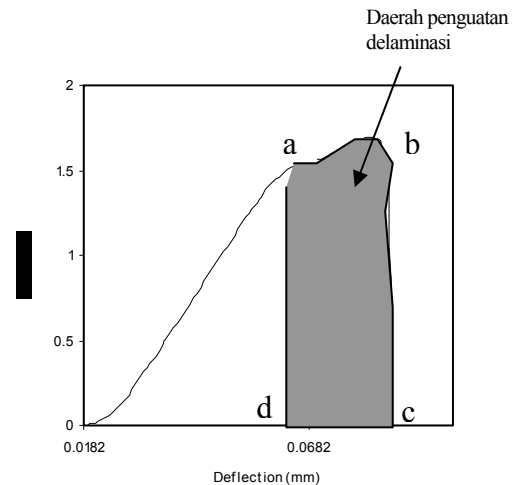
Variabel P adalah beban maksimum yang dapat ditahan oleh benda uji

Struktur mikro diamati dengan *scanning electron microscope* (SEM). Adanya gradasi pada benda uji dibuktikan dengan *electron probe micro analyzer* (EPMA).

HASIL DAN PEMBAHASAN

Pada pengujian ketangguhan retak, produk ditemukan memiliki grafik beban terhadap defleksi yang unik (Gambar 5). Bila tidak ada penguatan delaminasi maka lintas akan melalui o-a-d, namun

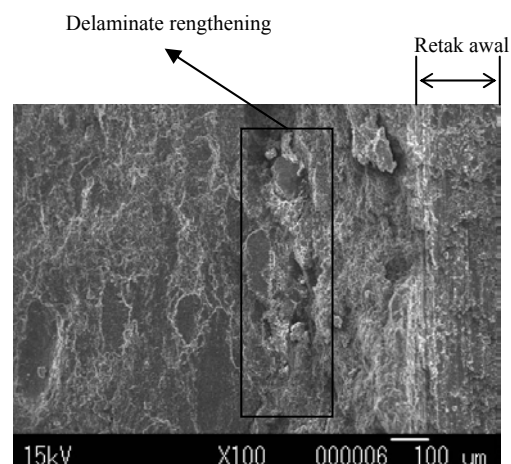
pada penelitian ini ditemukan lintasan melalui o-a-b-c-d. Daerah o-a-b-c-d merupakan daerah terjadinya penguatan delaminasi yang ditandai dengan adanya peningkatan yang tidak linier di daerah lintasan a-b.



Gambar 5. Grafik Beban Terhadap Defleksi pada Pengujian Ketangguhan Retak

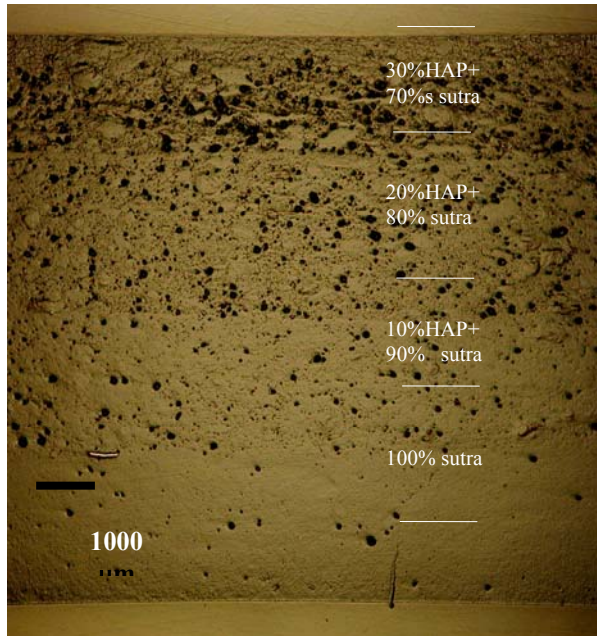
Daerah a-b-c-d pada Gambar 5 adalah daerah terjadinya penguatan delaminasi (*delaminate strengthening*). Jika tidak ada penguatan delaminasi maka grafik akan melalui lintasan o-a-d.

Nilai ketangguhan retak produk diperoleh sebesar $0.45 \text{ MPa.m}^{1/2}$. Pengamatan permukaan patahan menunjukkan bahwa terjadi penguatan delaminasi (*delaminate-strengthening*) sehingga benda uji dapat menahan beban maksimum sampai pada beberapa kali nilai defleksi yang terjadi (Gambar 5). Proses penguatan diawali dengan adanya delaminasi ikatan antara lapis sehingga ujung retak menjadi tumpul. Keadaan ini menyebabkan dibutuhkan tambahan beban untuk merambatkan retak (Gambar 6).

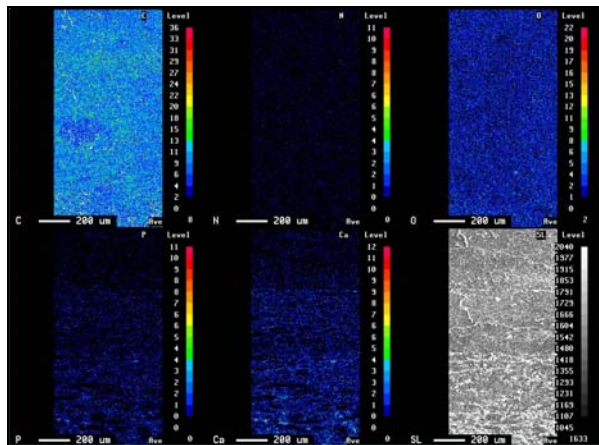


Gambar 6. Gambar SEM Permukaan Patahan Benda Uji

Struktur mikro potongan melintang benda uji dapat dilihat pada Gambar 7. Distribusi HAP pada benda uji dapat dibuktikan dengan menggunakan *electron probe micro analyzer* (EPMA) seperti terlihat pada Gambar 8.



Gambar 7. Gambar Struktur Mikro Potongan Melintang Produk. Gambar Diperoleh dengan Mikroskop Optik dengan Pembesaran 10x.



Gambar 8. Distribusi Unsur-Unsur Utama dalam FGM.

Pada Gambar 8, lapisan paling bawah mengandung 70% serat sutra, dan lapisan paling atas mengandung 100% serat sutra. Unsur utama yaitu Ca dan P tampak bergradasi dari bawah ke atas

KESIMPULAN

Functionally graded material (FGM) *hydroxyapatite* (Hap)-serat sutra dengan ketebalan 2.5 mm dan diameter 15 mm dapat dibuat dengan teknik *pulse electric current sintering* seperti dikembangkan

dalam penelitian ini. Benda uji disinter sampai pada suhu 200°C dengan laju pemanasan 100°C/menit dalam kondisi vakum. Proses menggunakan gaya tekan 4 kN.

UCAPAN TERIMAKASIH

Penulis mengucapkan terimakasih atas arahan dari Prof. Shinji Hirai dan Dr. Michihiro Ohta dari *Muroran Institute of Technology*, juga kepada Prof. Motohiro Uo dari *School of Dentistry, Hokkaido University, Japan*. Ucapan terimakasih secara khusus juga ditujukan kepada Mr. Yuta Koyoshi, Mr. Atsushi Kaneko, Mr. Hiroaki Sawada, dan Miss Kaoru Turumaki atas arahannya dalam mengoperasikan seluruh alat uji. Penelitian ini mendapat dukungan penuh dari *The Japan Society for Promotion of Science* (JSPS).

DAFTAR PUSTAKA

1. Zeming He, J. Ma, Cong Wang, Constitutive modeling of the densification and the grain growth of hydroxyapatite ceramics, *Biomaterials*, 26, 2005, pp. 1613–1621.
2. Y.W. Gu, N.H. Loh, K.A. Khor, S.B. Tor, P. Cheang, Spark plasma sintering of hydroxyapatite powders, *Biomaterials*, 23, 2002, pp. 37–43.
3. Nasser Y. Mostafa, Characterization, thermal stability and sintering of hydroxyapatite powders prepared by different routes, *Materials Chemistry and Physics*, 94, 2005, pp. 333–341.
4. Lorenz Meinel, Robert Fajardo, Sandra Hofmann, Robert Langer, Jake Chen, Brian Snyder, Gordana Vunjak-Novakovic, David Kaplan, Silk implants for the healing of critical size bone defects, *Bone*, 37, 2005, 688– 698.
5. Rebecca L. Horan, Kathryn Antle, Adam L. Collette, Yongzhong Wang, Jia Huang, Jodie E. Moreau, Vladimir Volloch, David L. Kaplan, Gregory H. Altman, In vitro degradation of silk fibroin, *Biomaterials*, 26, 2005, pp. 3385–3393.
6. Hyoun-Joon Jin, Jingsong Chen, Vassilis Karageorgiou, Gregory H. Altman, David L. Kaplan, Human bone marrow stromal cell responses on electrospun silk fibroin mats, *Biomaterials*, 25, 2004, pp. 1039–1047.
7. Gregory H. Altman, Frank Diaz, Caroline Jakuba, Tara Calabro, Rebecca L. Horan, Jingsong Chen, Helen Lu, John Richmond, David L. Kaplan, Silk-based biomaterials, *Biomaterials*, 24, 2003, 401–416.
8. W. Pompe, H. Worch, M. Eppe, W. Friess, M. Gelinsky, P. Greil, U. Hempel, D. Scharnwebe.

